

PAT-NO: JP361195954A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 61195954 A

TITLE: PERMANENT MAGNET ALLOY

PUBN-DATE: August 30, 1986

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

OKADA, TSUTOMU

YAMAMOTO, KAZUHIRO

INT-CL (IPC): C22C038/10, H01F001/08

ABSTRACT:

PURPOSE: To obtain a permanent magnet alloy having superior magnetic and temperature characteristics by combinedly adding specified amounts of Co and Ce to an Nd-Pr-Fe-B type permanent magnet alloy.

CONSTITUTION: This permanent magnet alloy is made of a rare earth element-Fe-Co-B-Ce type sintered body having a composition represented by general formula I, wherein R is a mixture of 65&sim;95wt% Nd with 35&sim;5wt% Pr, X is 11.5&sim;20.0atomic%, Z is 5.0&sim;35.0atomic%, E is 5.5&sim;12.0atomic%, F is 0.1&sim;3.0 atomic%, and Y is the balance. The sintered body is an inexpensive and magnetically anisotropic sintered body having a high Curie temp., superior magnetic characteristics and sinterability.

COPYRIGHT: (C)1986,JPO&Japio

## ⑫ 公開特許公報 (A) 昭61-195954

⑬ Int.Cl.<sup>1</sup>C 22 C 38/10  
H 01 F 1/08

識別記号

厅内整理番号

7619-4K  
7354-5E

⑭ 公開 昭和61年(1986)8月30日

審査請求 有 発明の数 1 (全3頁)

⑤ 発明の名称 永久磁石合金

⑥ 特 願 昭60-35292

⑦ 出 願 昭60(1985)2月26日

⑧ 発明者 岡田 力 神戸市東灘区深江北町4-14-34 三徳金属工業株式会社  
内⑨ 発明者 山本 和弘 神戸市東灘区深江北町4-14-34 三徳金属工業株式会社  
内

⑩ 出願人 三徳金属工業株式会社 神戸市東灘区深江北町4-14-34

⑪ 代理人 弁理士 酒井 一 外2名

## 明細書

1. 発明の名称 永久磁石合金

2. 特許請求の範囲

下記の一般式



(式中、Rはネオジム65~95重量%及びプラセオジム35~5重量%を含む希土類元素混合物、Feは鉄、Coはコバルト、Bはホウ素、Ceはセリウムを各々表わし、Xは11.5~20.0原子%、Zは5.0~35.0原子%、Eは5.5~12.0原子%、Fは0.1~3.0原子%及びYが残部を示す)で表わされる磁気異方性焼結体であることを特徴とする永久磁石合金。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は永久磁石合金、更に詳細にはネオジム、プラセオジム、鉄、コバルト、ホウ素、セリウムを含む永久磁石合金に関する。

(従来の技術及び問題点)

従来より希土類元素-鉄-ホウ素系永久磁石合金としてはNd-Fe-B系焼結体が公知であり、この合金材料はSm-Co系永久磁石合金に比較して原料が入手しやすく、比較的安価で且つ磁気特性が優れていることから特に注目を集めている。ところが、Nd-Fe-B系焼結体はそのキューリー温度T<sub>c</sub>が310°Cであり、Sm-Co系永久磁石合金のキューリー温度T<sub>c</sub>747°Cに比較して温度特性が著しく劣るという欠点がある。この温度特性を改善するためNd-Fe-B系合金にコバルトを添加する試みがなされているが、コバルトの添加によりキューリー温度T<sub>c</sub>は向上するが、磁気特性が低下してしまうという欠点がある。

(発明の目的)

本発明によれば、Nd-Fe-B系焼結体永久磁石合金より更に安価で高磁気特性を有し、しかも優れた温度特性を兼ね備えた永久磁石合金を提供することを目的とする。

(問題点を解決するための手段)

本発明の永久磁石合金は、下記の一般式



(式中、Rはネオジム65~95重量%及びプラセオジム35~5重量%を含む希土類元素混合物、Feは鉄、Coはコバルト、Bはホウ素、Ceはセリウムを各々表わし、Xは11.5~20.0原子%、Zは5.0~35.0原子%、Eは5.5~12.0原子%、Fは0.1~3.0原子%及びYが残部を示す)で表わされる磁気異方性焼結体であることを特徴とする。

以下、本発明を更に詳細に説明する。

本発明では永久磁石合金成分としてネオジム(Nd)65~95重量%及びプラセオジム(Pr)35~5重量%を含む希土類元素混合物を用いる。かような希土類元素混合物は、天然に存在する希土類元素よりセリウム(Ce)、ランタン(La)、サマリウム(Sm)等を各方面の用途に応じて分離した後に副生する、酸化ネオジム65~95重量%、酸化プラセオジム35~5重量%を含む混合物を利用して酸化物溶融塩電解

法により得ることができるので、ネオジムを単体として含む従来のNd-Fe-B系永久磁石合金材料に比して大幅に安価であり、工業的規模での生産が可能である。前記希土類元素混合物中にはネオジム、プラセオジム以外に微量の、たとえば0.5重量%程度の他の希土類元素が含まれていてもよい。本発明にて用いる上記希土類元素混合物中のネオジムの量が65重量%未満になると相対的にプラセオジムの量が35重量%を越え、飽和磁化Isが低くなり磁気特性が低下する。また一方ネオジムの量が95重量%を越える希土類元素混合物を得ようとすると、必然的に分離工程が必要となる。好ましい組成の副生混合物として存在するものをわざわざ分離すると製造コストが高くなり工業的に生産するには適さない。

本発明ではネオジム-プラセオジム-鉄-ホウ素の系にコバルト(Co)及びセリウム(Ce)を併用添加する点に大きな特徴を有する。コバルト単独の添加では磁束密度の温度特性は改善されるが、磁気特性は低下してしまうことが知られて

おり、一方セリウムは磁石材料としては悪い影響を与えるというのが従来の常識であった。更に詳細には、Ce-Fe-B系合金材料はNd-Fe-B系合金材料に比して飽和磁化Isが前者の場合1.16テスラ(T)、後者の場合1.57テスラ(T)、また異方性磁場Haが前者では3.7MA/m、後者では1.2MA/mと極端に差があるため、セリウムを永久磁石材料中に含ませると飽和磁化、保磁力が低くなり、高磁気特性が得られないと推測されていた。故に、磁石材料中にはセリウムをできる限り除去することが常識とされていた。しかしながら、驚くべきことに特許請求の範囲に記載する特定範囲の量のセリウムを、特定範囲の量のコバルトと併用することによりキューリー温度を高く保持し得ると共に焼結性が著しく改善された高密度の焼結体が得られ、しかも保磁力が大きく、従って最大エネルギー積が大きい高磁気特性と温度特性とを兼ね備えた永久磁石合金が得られることが今般本発明により明らかとなった。

本発明にて用いるコバルトは電解法で製造され

たものを用いることができ、市販品としては日鉄ニッケル・コバルト精練錠製の純度99.9%のものがある。

また、本発明にて用いるセリウムは酸化セリウムから溶融塩電解法にて製造されたものを用いることができ、市販品としては三徳金属工業錠製純度99.5%のものがある。

本発明に用いるホウ素としては純ボロン、フェロボロン等を用いることができ、不純物としてケイ素、アルミニウム、炭素等を含んでいてもよい。また鉄としては電解鉄、純鉄、低炭素軟鉄等を用いることができる。

本発明では上述の希土類元素混合物11.5~20.0原子%、コバルト5.0~35.0原子%、ホウ素5.5~12.0原子%、セリウム0.1~3.0原子%、残部が鉄の範囲の組成とする。希土類元素混合物が11.5原子%未満ではα-Feの初晶がでてくるので強磁性体が得られず、一方20.0原子%を越えるとR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>Bの強磁性相の量が減少し、高磁気特性が発現しない。また、コバルトが5.0原子%

未満ではキューリー温度の上昇が認められず、一方35.0原子%を越えると、磁気特性の低下が著しい。更に、またホウ素が5.5原子%未満では安定な強磁性相が得られない。また、ホウ素量の増加に伴い飽和磁化  $I_s$  が低下し、12.0原子%以上では高特性が得られない。セリウムが0.1原子%未満では焼結性が悪くなり、高磁気特性が得られず、また3.0原子%を越えると、磁気特性が低下する。

本発明の永久磁石合金を製造するにあたって原料金属を1500°C程度にて溶解し、鍛造して合金インゴットを調製し、これを粉碎した後、得られた粉末を10KOe程度の磁界中で圧縮成形し、次いで1000°C~1100°C程度で約1時間焼結することにより焼結体として得ることができる。

#### (実施例)

以下、本発明を実施例につき説明する。

#### 実施例1

酸化物溶融塩電解法にてネオジム75wt%、プラセオジム25wt%を含む希土類元素混合物31.8gを製造し、鉄として電解鉄525g、コバルト

130g、ホウ素10g、セリウム17gと共にアルミナルツボに入れ、10kVAの高周波真空溶解炉中にてアルゴン気中1500°Cにて溶解して合金インゴットを製造した。

この合金インゴットを鉄乳鉢中で粗粉碎した後、ヘキサン中ポールミルで粉碎し、平均粒径3~5μmの微粉末を得た。次いで、この微粉末を10KOeの磁界中で1.5 Torr/cmの圧力にて金型を用いて圧縮成形した。この成形体を1040~1100°C、1時間焼結後、400~600°Cにて1時間熱処理し、本発明の永久磁石合金を得た。

磁気特性を測定した結果を表に記載する。

#### 実施例2~7、比較例1~3

実施例1の手法に従って、表に記載の組成の各種合金を製造した。その磁気特性を表に記載する。

実施例	成形						保磁力 $Br$ ( $\text{Ku}^{-1}$ )	磁束密度 $Br(T)$	最大エネルギー ギー積 ( $BH$ ) <sub>max</sub> ( $\text{Ku}^2\text{m}^2$ )	密度 g/cm <sup>3</sup>	キューリー 温度 °C				
	組成 (原子%、且し希土類元素混合物 中のNd及びPrはwt%)														
	R	Nd	Pr	Fe	Co	B	Ce								
1	14.2	75	25	68.5	12.0	6.5	0.8	1.30	1.28	880	304	7.45	450		
2	14.2	80	15	68.5	12.0	6.5	0.8	1.33	1.31	800	320	7.45	450		
3	13.5	80	15	68.5	12.0	6.5	1.5	1.30	1.28	760	290	7.50	420		
4	13.5	80	15	62.0	15.0	8.0	1.5	1.28	1.26	720	280	7.50	430		
5	12.0	75	25	62.0	15.0	8.0	3.0	1.25	1.23	680	256	7.52	400		
6	13.5	75	25	73.5	5.0	6.5	1.5	1.30	1.28	800	280	7.50	370		
7	13.5	75	25	46.5	30.0	6.5	1.5	1.20	1.18	560	240	7.50	550		
比較例															
1	15.0	85	15	78.5	—	6.5	—	1.30	1.28	800	290	7.50	310		
2	8.0	85	15	68.5	12.0	6.5	6.0	1.15	1.13	560	216	7.55	350		
3	13.5	85	15	28.5	50.0	6.5	1.5	1.05	1.00	560	190	7.56	750		

表の結果から、実施例1~7ではいずれも焼結性(密度)、磁気特性及びキューリー温度のバランスがとれていることが判るが、比較例1ではコバルト及びセリウムが添加されていないため、キューリー温度が低く、また焼結性も悪い。比較例2ではセリウムが多すぎるため、磁気特性が悪く、また比較例3ではコバルトが多すぎるためキューリー温度は著しく高くなるが、磁気特性が著しく低下することが判る。

特許出願人 三徳金属工業株式会社

代理人弁理士 酒井 一

同 繁坂 順

同 繁坂 順

